

10.11.2004

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

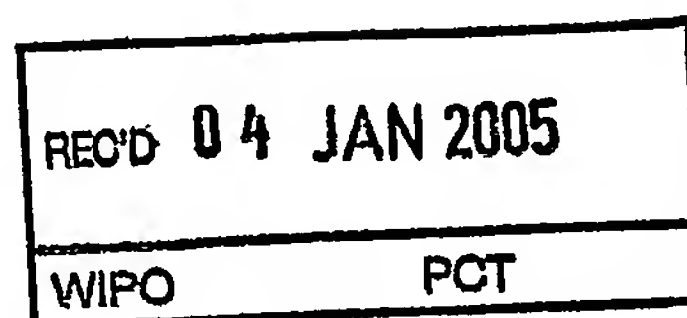
別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日
Date of Application: 2004年 8月 9日

出願番号
Application Number: 特願2004-232588
[ST. 10/C]: [JP 2004-232588]

出願人
Applicant(s): ニッタ株式会社

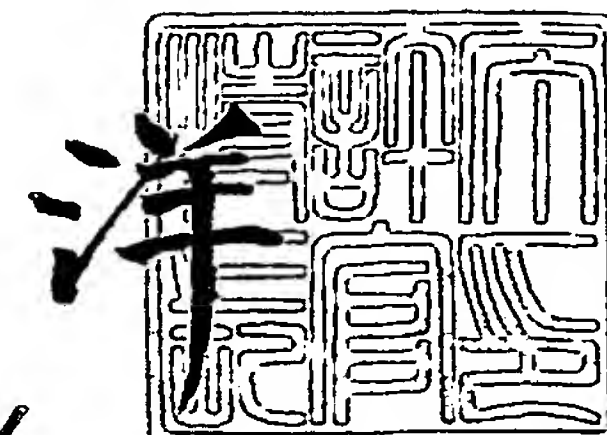


PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年12月17日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小川



BEST AVAILABLE COPY

【書類名】 特許願
【整理番号】 0406-049
【提出日】 平成16年 8月 9日
【あて先】 特許庁長官 殿
【国際特許分類】 H01M 8/02
【発明者】
 【住所又は居所】 奈良県大和郡山市池沢町 1 7 2 ニッタ株式会社 奈良工場内
 【氏名】 笠崎 敏明
【発明者】
 【住所又は居所】 奈良県大和郡山市池沢町 1 7 2 ニッタ株式会社 奈良工場内
 【氏名】 西尾 智博
【発明者】
 【住所又は居所】 神奈川県津久井郡津久井町根小屋 2 9 1 5 - 6 8
 【氏名】 宇佐見 育三
【特許出願人】
 【識別番号】 000111085
 【氏名又は名称】 ニッタ株式会社
【代理人】
 【識別番号】 100075557
 【弁理士】
 【フリガナ】 サイキョウ
 【氏名又は名称】 西教 圭一郎
 【電話番号】 06-6268-1171
【選任した代理人】
 【識別番号】 100072235
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 杉山 毅至
【選任した代理人】
 【識別番号】 100101638
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 廣瀬 峰太郎
【手数料の表示】
 【予納台帳番号】 009106
 【納付金額】 16,000円
【提出物件の目録】
 【物件名】 特許請求の範囲 1
 【物件名】 明細書 1
 【物件名】 図面 1
 【物件名】 要約書 1
 【包括委任状番号】 0409499

【書類名】 特許請求の範囲**【請求項 1】**

電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在され、燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部と、外周部に設けられ、燃料ガスおよび酸化剤ガスの漏出を防ぐシール部とが一体化されたセパレータであって、

シール部に相当する領域には、電解質組立体の触媒電極形成面に平行に延びるシール突部であって、その頂部がばね力によって前記電解質組立体に圧接されるように構成されたシール突部を有することを特徴とするセパレータ。

【請求項 2】

金属板からなることを特徴とする請求項 1 記載のセパレータ。

【請求項 3】

少なくとも前記シール突部が電解質層と接触する部分に、弾性体で構成される高分子弾性層が設けられることを特徴とする請求項 1 または 2 記載のセパレータ。

【請求項 4】

前記高分子弾性層の幅は 1 ～ 1 0 mm であり、厚みは 1 ～ 1 0 0 μ m であることを特徴とする請求項 1 ～ 3 のいずれか 1 つに記載のセパレータ。

【請求項 5】

前記シール突部を 2 以上有し、それぞれのシール突部の頂部と電解質層との当接箇所を仮想的に示す当接線が互いに平行であることを特徴とする請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 つに記載のセパレータ。

【請求項 6】

シール部および分離部以外の領域に、前記シール突部と同様に構成された補助突部を有し、補助突部は、セパレータを含む燃料電池の組み立て時に、電解質組立体との間に生じる面圧が均一に分布するように設けられることを特徴とする請求項 1 ～ 5 のいずれか 1 つに記載のセパレータ。

【書類名】明細書

【発明の名称】セパレータ

【技術分野】

【0 0 0 1】

本発明は、スタック型の固体高分子型燃料電池に備えられるセパレータの製造方法に関する。

【背景技術】

【0 0 0 2】

従来から、限りあるエネルギー資源の有効利用や、地球温暖化防止のための省エネルギーの必要性は広く認識されている。今日では、火力発電によって、熱エネルギーを電力エネルギーに変換する形でエネルギー需要が賄われている。

【0 0 0 3】

しかしながら、火力発電に必要な石炭および石油は埋蔵量が有限な資源であり、これらに代わる新たなエネルギー資源が必要となっている。そこで注目されているのが水素を燃料にして化学発電する燃料電池である。

【0 0 0 4】

燃料電池は、2つの電極と電極間に挟まれた電解質とを有している。陰極では、供給された水素がイオン化して水素イオンとなり電解質中を陽極に向かって移動する。陽極では、供給された酸素と電解質中を移動してきた水素イオンとが反応して水を発生する。水素がイオン化したときに発生した電子が、陰極から配線を通して陽極へと移動することで電流が流れ、電気が発生する。

【0 0 0 5】

燃料電池は、主に電解質の違いから4種類に分類される。イオン導電性セラミックスを電解質に用いた固体電解質型燃料電池（S O F C）、水素イオン導電性高分子膜を電解質に用いた固体高分子型燃料電池（P E F C）、高濃度リン酸を電解質に用いたリン酸型燃料電池（P A F C）、アルカリ金属炭酸塩を電解質に用いた熔融炭酸型燃料電池（M C F C）の4種類である。この中でも特に作動温度が80℃と低い固体高分子型燃料電池（P E F C）の開発が進んでいる。

【0 0 0 6】

固体高分子型燃料電池の構造は、表面に触媒電極を設けた電解質層と、電解質層を両側から挟み、水素および酸素を供給するための溝を設けたセパレータと、電極発生した電気を回収する集電板などを含んで構成される。電解質層と同じく、セパレータについても改良が重ねられている。

【0 0 0 7】

セパレータの要求特性としては、導電性が高く、かつ燃料ガスおよび酸化剤ガスに対して気密性が高く、さらに水素および酸素を酸化還元する際の反応に対して高い耐食性を持つ必要がある。

これらの要求を満たすために以下のようなセパレータ材料が使用されている。

【0 0 0 8】

最もよく使用されているものとして緻密性カーボンがある。緻密性カーボンは導電性、耐食性に優れ、機械的強度も高い。また加工性がよく軽量である。しかし、振動や衝撃に弱く、切削加工が必要なため、加工費が高くなる。また気体の不浸透化処理を施す必要がある。

【0 0 0 9】

また、合成樹脂も使用され、フェノール樹脂、エポキシ樹脂などの熱硬化性樹脂が使用される。合成樹脂は、低コストであることが主な特徴であるが、寸法安定性が悪く、導電性にも劣る。

【0 0 1 0】

導電性、加工性、密閉性などの観点から、金属が使用されることが多くなっている。金属としては、主にチタン、ステンレスが使用される。しかし、金属は腐食し易く、電解質

膜に金属イオンが取り込まれてイオン導電性が低下してしまうため、セパレータ表面に金めっきを施す必要がある。

【0 0 1 1】

また、ゴムも使用され、エチレン-プロピレン-ジエンゴムなどが使用される。ゴムは、ガス透過性が低く、シール性が高い。

【0 0 1 2】

特許文献 1 には、固体高分子電解質型燃料電池が開示されている。この固体高分子電解質型燃料電池では、セパレータとしてステンレス鋼、チタン合金など大気によって容易に不動態膜が形成される金属薄板を用いており、プレス加工によって所定の形状に加工している。

【0 0 1 3】

特許文献 2 には、燃料電池用セパレータが開示されている。この燃料電池用セパレータは、周囲の縁部にリブを形成し、シール部材で挟持されたときの剛性を高めて反りを抑制している。

【0 0 1 4】

また、特許文献 3 には、燃料電池用セパレータが開示されている。この燃料電池用セパレータは、金属基板の少なくとも片面に、樹脂と導電性充填剤を混合した体積抵抗率が $1.0 \Omega \cdot \text{cm}$ 以下の第 1 の樹脂層と、体積抵抗率が第 1 の樹脂層よりも小さい第 2 の樹脂層とを設け、集電性能と成型性、強度および耐食性を向上している。

【0 0 1 5】

【特許文献 1】 特開平 8 - 1 8 0 8 8 3 号公報

【特許文献 2】 特開 2 0 0 2 - 1 7 5 8 1 8 号公報

【特許文献 3】 特開 2 0 0 3 - 2 9 7 3 8 3 号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0 0 1 6】

従来のセパレータは、水素ガス、酸素ガスおよび冷却水などが漏れないように、外周部を O リングなどのシール材を用いて密閉している。

【0 0 1 7】

また、特許文献 1 および特許文献 2 に示されているように、反応ガスおよび冷却用流体が漏れ出るのを防止するために、セパレータの周辺部にガスケットを設けている。

【0 0 1 8】

このように、従来の燃料電池では、外周部のセパレータとセルとの間に、シール材を形成する必要がある。また製造工程としては、セパレータを加工形成した後、シール材をセパレータの外周部に貼り付ける工程またはセパレータを芯にして金型内にてシール材を成型する工程が必要である。

【0 0 1 9】

本発明の目的は、燃料電池の部材点数を削減し、製造工程を短縮することができるセパレータを提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0 0 2 0】

本発明は、電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在され、燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部と、外周部に設けられ、燃料ガスおよび酸化剤ガスの漏出を防ぐシール部とが一体化されたセパレータであって、

シール部に相当する領域には、電解質組立体の触媒電極形成面に平行に延びるシール突部であって、その頂部がばね力によって前記電解質組立体に圧接されるように構成されたシール突部を有することを特徴とするセパレータである。

【0 0 2 1】

また本発明は、金属板からなることを特徴とする。

また本発明は、少なくとも前記シール突部が電解質層と接触する部分に、弾性体で構成される高分子弾性層が設けられることを特徴とする。

【0022】

また本発明は、前記高分子弾性層の幅は 1 ～ 1 0 mm であり、厚みは 1 ～ 1 0 0 μ m であることを特徴とする。

【0023】

また本発明は、前記シール突部を 2 以上有し、それぞれのシール突部の頂部と電解質層との当接箇所を仮想的に示す当接線が互いに平行であることを特徴とする。

【0024】

また本発明は、シール部および分離部以外の領域に、前記シール突部と同様に構成された補助突部を有し、補助突部は、セパレータを含む燃料電池の組み立て時に、電解質組立体との間に生じる面圧が均一に分布するように設けられることを特徴とする。

【発明の効果】

【0025】

本発明によれば、電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在され、燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部と、外周部に設けられ、燃料ガスおよび酸化剤ガスの漏出を防ぐシール部とが一体化されたセパレータである。

【0026】

セパレータは金属板からなり、シール部に相当する領域には、電解質組立体の触媒電極形成面に平行に延びるシール突部であって、その頂部がばね力によって前記電解質組立体に圧接されるように構成されたシール突部を有する。

【0027】

これにより、従来必要であった、Oリング、ガスケットなどのシール部材を必要とせず、燃料電池の部材点数を削減し、製造工程を短縮することができる。

【0028】

また本発明によれば、少なくとも前記シール突部が電解質層と接触する部分に、弾性体で構成される高分子弾性層が設けられる。

これにより、弾性体である高分子弾性層を設けることでシール性がさらに向上する。

【0029】

また本発明によれば、前記高分子弾性層の幅は 1 ～ 1 0 mm であり、厚みは 1 ～ 1 0 0 μ m である。

【0030】

これにより、高分子弾性層を設ける領域がより小さな領域であっても十分なシール性を得ることができる。

【0031】

また本発明によれば、前記シール突部を 2 以上有し、それぞれのシール突部の頂部と電解質層との当接箇所を仮想的に示す当接線が互いに平行である。

これにより、さらにシール性を向上させることができる。

【0032】

また本発明によれば、シール部および分離部以外の領域に、前記シール突部と同様に構成された補助突部を有し、補助突部は、セパレータを含む燃料電池の組み立て時に、電解質組立体との間に生じる面圧が均一に分布するように設けられる。

【0033】

これにより、組み立て時にセパレータが傾くなどしてセパレータと電解質組立体との間で生じる接触不良などを防止することができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0034】

図 1 は、固体高分子型燃料電池 (Polymer Electrolyte Fuel Cell、略称 P E F C) 1 0 0 を展開した状態で模式的に示した斜視図である。P E F C 1 0 0 は、セパレータ 1、

燃料電池セル 2、集電板 3、絶縁シート 4、エンドフランジ 5、電極配線 12 を有する。PEFC 100 は、高電圧、高出力を得るために、複数の燃料電池セル 2 を直列に接続した、いわゆるスタック状態で構成される。このスタック状態を構成するためには、燃料電池セル 2 間にセパレータを配置し、各燃料電池セル 2 に対して水素および酸素の供給と、発生した電気の回収とを行う。したがって、図 1 に示すように、燃料電池セル 2 とセパレータ 1 とが交互に配置される。この配置の最外層にはセパレータ 1 が配置され、セパレータ 1 のさらに外側には集電板 3 が設けられる。集電板 3 は、各セパレータ 1 で回収された電気を集めて取り出すために設けられ、電極配線 12 が接続されている。絶縁シート 4 は、集電板 3 とエンドフランジ 5 との間に設けられ、集電板 3 からエンドフランジ 5 に電流が漏れるのを防止している。エンドフランジ 5 は、複数の燃料電池セル 2 をスタック状態に保持するためのケースである。

【0035】

エンドフランジ 5 には、水素ガス供給口 6、冷却水供給口 7、酸素ガス供給口 8、水素ガス排出口 9、冷却水排出口 10 および酸素ガス排出口 11 が形成されている。各供給口から供給されたガスおよび水の流体は、燃料電池セル 2 の積層方向に貫通する各往路を通り最外層のセパレータ 1 で折り返し、各復路を通して各排出口から排出される。

【0036】

往路および復路は、各セパレータ 1 で分岐しており、往路を流れる各流体は、セパレータ 1 によって形成された、燃料電池セル 2 の面方向に平行な流路を通して復路に流れ込む。水素ガスおよび酸素ガスは、燃料電池セル 2 で消費されるので、未反応ガスが復路を通して排出されることとなる。排出された未反応ガスは回収され、再度供給口から供給される。酸素ガス流路付近では酸素と水素との反応によって水が生成するので、排出された酸素ガスは水を含んでいる。排出された酸素ガスを再度供給するには水を除去する必要がある。

【0037】

燃料ガスである水素ガスおよび酸化剤ガスである酸素ガスは、それぞれ水素および酸素のみからなるガスである必要はなく、水素、酸素以外にも、接触する流路を劣化、変性させないガスであれば含んでいてもよい。たとえば、酸素ガスとして窒素を含む空気を用いてもよい。また、水素源としては水素ガスに限らずメタンガス、エチレンガス、天然ガスなどでもよく、エタノールなどでもよい。

【0038】

図 2 は、セパレータ 1 を含む単位電池 101 の水平断面図である。単位電池 101 とは、1 つの燃料電池セル 2 と、この両側に配置された 2 つのセパレータ 1 とからなり、水素および酸素を供給することで電力を発生させることができる最小の構成である。

【0039】

電解質組立体である燃料電池セル 2 は、電解質媒体である高分子膜 20 と、高分子膜 20 の厚み方向表面に形成した触媒電極 21 とからなり、MEA (Membrane Electrode Assembly) と呼ばれる。

【0040】

高分子膜 20 は、水素イオン（プロトン）を透過するプロトン導電性電解質膜であり、パーフルオロスルホン酸樹脂膜（たとえば、デュポン社製、商品名 ナフイオン）がよく用いられる。

【0041】

触媒電極 21 は、高分子膜 20 の厚み方向表面に、プラチナ、ルテニウムなどの触媒金属を含むカーボン層として積層される。触媒電極 21 に水素ガス、酸素ガスが供給されると、触媒電極 21 と高分子膜 20 との界面で電気化学反応が生じて直流電力が発生する。

【0042】

高分子膜 20 は、厚みが約 0.1 mm であり、触媒電極 21 は含有する触媒金属などによっても変わるが、数 μ m の厚みで形成される。

【0043】

セパレータ 1 は、水素ガスおよび酸素ガスの流路を分離する分離部 13 と、外周部に設けられ、水素ガスおよび酸素ガスの漏出を防ぐシール部 14 とを有している。本実施形態では、触媒電極 21 は、高分子膜 20 の全面に形成されているのではなく、外周の幅 1 ～ 20 mm、好ましくは 5 ～ 10 mm にわたって高分子膜 20 が表面に露出している。セパレータ 1 の分離部 13 は、触媒電極 21 が形成されている領域に対向する領域に形成され、シール部 14 は、高分子膜 20 が露出している領域に対向する領域に形成される。

【0044】

セパレータ 1 の主な材質として、平板状の金属薄板を用いる。たとえば、鉄、アルミニウム、チタンなどの金属薄板、特にステンレス（たとえば SUS304 など）鋼板、SPCC（一般用冷間圧延鋼板）、耐食性鋼板が好ましい。ステンレス鋼板については、表面処理されたものを使用することができる。たとえば、表面を酸洗処理、電解エッチング処理したもの、導電性介在物を含むもの、BA 皮膜を形成したもの、イオンプレーティング加工により導電性化合物をコーティングしたものなどが使用できる。また、結晶組織を超微細化した高耐食性ステンレス鋼板なども使用できる。

【0045】

上記のような金属薄板を塑性変形加工、たとえばプレス加工することによって、分離部 13 とシール部 14 とを一体形成することができる。なお、耐熱性を向上させるために、プレス加工後に、BH（Baked Hardening）処理を施したものが好ましい。

【0046】

分離部 13 には、触媒電極 21 の形成面に平行で、互いに平行な複数の流路溝が形成されている。この流路溝は、ガスの流れ方向に垂直な断面が凹形状となっている。流路溝は、分離壁 15 と電極接触壁 16 とからなり、分離壁 15、電極接触壁 16 および触媒電極 21 で囲まれた空間が水素ガス流路 17 および酸素ガス流路 18 となる。分離壁 15 は、水素ガスと酸素ガスが混合しないように水素ガス流路 17 と酸素ガス流路 18 とを隔てる。電極接触壁 16 は、触媒電極 21 に接触し、高分子膜 20 と触媒電極 21 との界面で発生した直流電力を直流電流として取り出し、分離壁 15、他の電極接触壁 16 などを通して集電板に収集される。

【0047】

互いに隣接する流路溝は、開放面が逆向きとなるように形成されており、これに応じて、水素ガス流路 17 および酸素ガス流路 18 を互いに隣接するように設定する。すなわち、同一の触媒電極 21 には同一のガスが接触するようにガス流路を設定する。さらに、1つの単位電池 101 を構成する 2つのセパレータ 1 は、図 2 に示すように、流路溝の開放部が、燃料電池セル 2 を挟んで対向するように配置される。すなわち、2つのセパレータ 1 は、燃料電池セル 2 の中心を対称面として面対称の関係となるように配置される。ただし、ガス流路の設定は、面対称の関係ではなく、燃料電池セル 2 を挟んで対向する流路溝が、異なるガスのガス流路を形成するように設定する。たとえば、図 2 に示すように、燃料電池セル 2 を挟んで対向するガス流路は、一方が水素ガス流路 17 であり、もう一方が酸素ガス流路 18 である。

【0048】

以上のようにセパレータ 1 を配置し、ガス流路を設定することで、電力を発生させることができる。

【0049】

なお、流路溝と触媒電極 21 とによって形成された流路には、水素ガスおよび酸素ガスに限らず、冷却水を流してもよい。冷却水を流す場合は、燃料電池セル 2 を挟んで対向する流路溝のいずれにも流すことが好ましい。

【0050】

シール部 14 には、触媒電極 21 の形成面に平行に延びるシール突部が形成される。このシール突部は、ガスの流れ方向に垂直な断面が逆 U 字形状または逆 V 字形状となっている。シール突部の頂部 19 は、ばね力によって、露出した高分子膜 20 に圧接される。この圧接位置でシールされ、水素ガスおよび酸素ガスの漏出を防ぐことができる。また、シ

ール突部を逆U字形状または逆V字形状とすることで、頂部19の膜接触面積を小さくし、Oリングと同様の高圧シールを実現している。

【0051】

シール突部の頂部19を、ばね力によって高分子膜20に圧接するには、高分子膜20と接触しない状態、すなわちPEFC1を組み立てる前の状態のセパレータ1において、シール突部の頂部19の位置が、PEFC1が組み立てられ、高分子膜20と接触する位置よりさらに高分子膜20側となるように予めシール部14を形成する。具体的には、図3(a)に示すように、PEFC1が組み立てられた状態では、シール突部の頂部19の位置は、触媒電極21との仮想接触面Aを基準とすると、触媒電極21との接触面と頂部19との距離が触媒電極21の厚み t_1 となるような位置になる。したがって、PEFC1が組み立てられる以前の状態では、図3(b)に示すように、シール突部の頂部19の位置は、触媒電極21との接触面との距離が t_1 より大きな t_2 となるように形成すればよい。分離部13とシール突部との接続部分がばねとして働くので、組み立て時に頂部19が高分子膜に圧接する際の圧力は、このばね力と接触面積によって決まる。ばね力は、フックの法則に従い、ばね定数（弾性定数）に変位量を掛けたものとなる。セパレータ1においては、ばね定数は、セパレータ1の材質およびシール部14の形状とで決まる。変位量は、 $\Delta t = t_2 - t_1$ である。したがって、材質と形状とを予め決定し、ばね定数を決定した状態で、プレス加工時に t_2 を変えることで、シール圧力を容易に調整することができる。最適なシール圧力を実現するために、材質および形状を変更してもよいことは言うまでもない。

【0052】

前述のように、燃料電池セル2を挟む2つのセパレータ1は、面对称の関係となるように配置されるので、頂部19による圧接位置も、燃料電池セル2の中心を対称面として面对称の関係となる。頂部19の圧接位置が対向する位置となることで、シール性が向上する。なお、前述のBH処理によって、シール部14の応力緩和を小さくし、シール性を保持することが可能である。

【0053】

図4は、単位電池101を側面から見た概略図である。中央部に分離部13が設けられ、外周部にシール部14が設けられている。なお、図4では、分離部13およびシール部14の詳細な形状は省略している。シール部14では、シール突部の頂部19が高分子膜20に当接しており、この当接箇所を仮想的に示す当接線であるシールラインLが分離部13を取り囲むことで水素ガスおよび酸素ガスの漏出を防いでいる。

【0054】

さらに、図2の水平断面図に示すように、シール突部の頂部19よりさらに外周部の頂部19aが、隣接する燃料電池セルに当接してシールすることでさらにシール性が向上する。この頂部19aによるシールラインは、頂部19によるシールラインと平行であり隣接している。

【0055】

図5は、第1の実施形態におけるシール部14の要部拡大図である。本実施形態では、セパレータ1は、金属薄板30からなり、シール部14では、シール突部の高分子膜20に接触する部分に高分子弾性層40が設けられ、高分子弾性層40が高分子膜20に当接してシールしている。

【0056】

これにより、シール性がさらに向上し、従来必要であった、Oリング、ガスケットなどのシール部材を必要とせず、燃料電池の部材点数を削減し、製造工程を短縮することができる。

【0057】

さらに、このシール突部によって、高分子弾性層40が薄層であってもシール機能を発揮し、応力緩和量が極めて低くなるという効果が得られる。

【0058】

高分子弾性層 4 0 のシールライン方向幅 W は、1 ~ 1 0 mm が好ましく、さら好ましくは 2 ~ 7 mm である。また、層厚み t は、1 ~ 1 0 0 μ m が好ましく、さら好ましくは 2 ~ 5 0 μ m である。このような領域に高分子弾性層 4 0 を設けることで、より小さな領域であっても十分なシール性を得ることができる。

【0 0 5 9】

金属薄板 3 0 を高分子膜 2 0 に直接に接触させると、シール突部の頂部が変形しているような場合に、変形部分と高分子膜 2 0 表面との間に微小な隙間が生じ、この隙間から流体が漏出するおそれがある。シール部 1 4 において、弾性体である高分子弾性層 4 0 を設けると、ばね力によって頂部 1 9 が圧接されることにより接触部分に変形し、高分子膜 2 0 表面との間に隙間が生じないのでシール性が向上する。

【0 0 6 0】

高分子弾性層 4 0 は、ゴムまたは合成樹脂からなり、ゴムとしては、たとえば、イソプレンゴム、ブタジエンゴム、スチレン-ブタジエンゴム、ブチルゴム、エチレン-プロピレンゴム、フッ素ゴム、シリコンゴムおよびニトリルゴムなどの汎用ゴム、耐ガス透過性および耐熱性を有するエピクロロヒドリンゴムなどを使用することができる。特に、耐熱性、耐酸性に優れたアリル系付加重合型ポリイソブチレンが好ましい。

【0 0 6 1】

また、合成樹脂としては、エポキシ樹脂、ウレタン-アクリレート樹脂、ポリアミド樹脂、シリコン樹脂および含フッ素樹脂などを使用することができる。特に、耐腐食性に優れた含フッ素樹脂が好ましく、たとえば、PTFE (ポリテトラフルオロエチレン)、PFA (テトラフルオロエチレン-パーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体)、FEP (テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体)、EPE (テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン-パーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体)、ETFE (テトラフルオロエチレン-エチレン共重合体)、PCTFE (ポリクロロトリフルオロエチレン)、ECTFE (クロロトリフルオロエチレン-エチレン共重合体)、PVDF (ポリフッ化ビニリデン)、PVF (ポリビニルフルオライド)、THV (テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン-フッ化ビニリデン共重合体)、VDF-HFP (フッ化ビニリデン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体)、TFE-P (フッ化ビニリデン-プロピレン共重合体) などが好ましい。

【0 0 6 2】

高分子弾性層 4 0 は、たとえば、金属薄板 3 0 を酸化処理するなどして表面粗化し、アンカー効果によって密着させるか、フェノール樹脂、レゾルシン樹脂、シリコン樹脂およびポリウレタンなどの樹脂系接着剤、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリベンズイミダゾール、ポリオキサジアゾールなどの耐熱性構造用接着剤、 α -シアノアクリレートなどの瞬間接着剤、ならびに熱硬化性樹脂 (エポキシ樹脂、フェノール樹脂など) に、脆性を緩和するために熱可塑性樹脂 (ナイロン、アセタール樹脂など) やエラストマー (ニトリルゴム、シリコンゴムなど) を混合したナイロン-エポキシ樹脂、ナイロン-フェノール樹脂などの接着剤を用いればよい。

【0 0 6 3】

なお、高分子弾性層 4 0 は、金属薄板 3 0 に接着する必要はなく、低度の付着、粘着、弱接着、強接着と要求条件によって適宜選択すればよい。低度の付着であっても、締め付け面圧が適性であれば十分なシール機能を発揮する。しかしながら、締め付け面圧以上の圧力が締め付け方向に対して横方向から加えられると、高分子弾性層 4 0 の横ずれ、脱落などが生じてしまうため、表面粗化も行うことが好ましい。

【0 0 6 4】

図 6 は、第 1 の実施形態における分離部 1 3 の要部拡大図である。本実施形態の分離部 1 3 では、金属薄板 3 0 が触媒電極 2 1 に接触して、高分子膜 2 0 と触媒電極 2 1 との界面で発生した直流電力を直流電流として取り出し、セパレータ 1 内を通過して集電板に収集される。

【0 0 6 5】

図7は、第2の実施形態におけるシール部14の要部拡大図である。本実施形態では、セパレータ1は、金属薄板30および被覆層31で構成され、被覆層31を形成して金属薄板30の表面を被覆している。シール部14では、第1の実施形態と同様にシール突部の高分子膜20に接触する部分に高分子弾性層40が設けられ、高分子弾性層40が高分子膜20に当接してシールしている。

【0066】

図8は、第2の実施形態における分離部13の要部拡大図である。分離部13では、被覆層31が触媒電極21に接触して直流電流を収集する。したがって、被覆層31は、導電性を有することが必要である。

【0067】

被覆層31としては、高分子弾性層40に使用するゴムまたは合成樹脂と同様のゴムまたは合成樹脂にカーボンフィラーなどの導電性フィラーを添加して導電性を付与したものを使用する。特に、アリル系付加重合型ポリイソブチレンにカーボンフィラーを添加したものが好ましい。

【0068】

図9は、第3の実施形態におけるシール部14の要部拡大図である。本実施形態では、セパレータ1は、金属薄板30、被覆層31および接着層32からなり、接着層32を介して金属薄板30の表面に被覆層31を形成している。金属薄板30の表面粗化によって十分な密着性が得られないようなゴムまたは合成樹脂を被覆層31として使用する場合は、接着層32を設ければよい。シール部14では、第1および第2の実施形態と同様にシール突部の高分子膜20に接触する部分に高分子弾性層40が設けられ、高分子弾性層40が高分子膜20に当接してシールしている。

【0069】

図10は、第3の実施形態における分離部13の要部拡大図である。分離部13では、第2の実施形態と同様に被覆層31が触媒電極21に接触して直流電流を収集する。したがって、被覆層31は、導電性を有することが必要である。

【0070】

被覆層31としては、高分子弾性層40に使用するゴムまたは合成樹脂と同様のゴムまたは合成樹脂にカーボンフィラーなどの導電性フィラーを添加して導電性を付与したものを使用する。特に、アリル系付加重合型ポリイソブチレンにカーボンフィラーを添加したものが好ましい。

【0071】

接着層32は、金属薄板30表面に対してトリアジンチオール類に代表される導電性カップリング剤によるコーティング、ポリアニリン類に代表される導電性ポリマーによるドーピング処理されたコーティングを行うことにより、金属表面に拡散層として形成される。金属表面に拡散したトリアジンチオール類、ポリアニリン類は、導電性を示すので、樹脂層32との導電性を確保し、発生した直流電力を直流電流として取り出すことができる。

【0072】

図11は、他の実施形態であるセパレータ1を含む単位電池101の水平断面図である。図に示すように、単位電池101の一方のセパレータ1において、シール突部が、高分子膜20と面接触するように、シール突部の断面を台形状としてもよい。また、図12に示すように、単位電池101の両方のセパレータ1において、シール突部が、高分子膜20と面接触するように、シール突部の断面を台形状としてもよい。

【0073】

図13は、単位電池101を側面から見た概略図である。分離部13は、必ずしも燃料電池セル2の全面にわたって設けられるとは限らず、図13に示したように、シールラインLが偏ってしまう場合がある。このような場合、組み立て時にセパレータ1と燃料電池セル2との間に生じる面圧の分布に偏りが生じ、分離部13での接触不良を生じることとなる。これを防止するために、シール部14以外の領域にもシール突部と同様の突部（補

助突部) を設ける。図に示すように、補助突部が高分子膜 2 0 に当接する箇所を示す当接ライン M とシールライン L とが燃料電池セル 2 面内に均一に分布するように、補助突部を設けることによって、面圧の分布が均一となる。

【0 0 7 4】

次にセパレータ 1 の製造方法について説明する。セパレータ 1 の製造方法は、主に以下の工程からなる。

【0 0 7 5】

(1) 金属薄板処理工程

シート状の金属薄板に対し、ゴムとの密着性を得るための処理を行う。処理方法には、前述の表面粗化による処理、接着層を形成する処理などがある。

【0 0 7 6】

(2) 型抜き加工処理

表面処理された金属薄板に対し、所定の外形およびガス経路を得るために、型抜き加工を行う。

【0 0 7 7】

(3) 被覆層形成処理

型抜き加工が施された金属薄板の表面に、予め導電性のカーボンフィラーなどを含有させた液状導電性ゴムをコーティングするか、グリーンシート状導電性ゴムを積層する。液状導電性ゴムには、たとえばポリイソブチレンゴムなどを用いる。

【0 0 7 8】

(4) 高分子弾性層形成処理

金属薄板または被覆層のシール突部の頂部となる領域に、高分子弾性層を設ける。具体的には、高分子弾性層となるゴムまたは合成樹脂を溶剤に溶解させた溶解液を用いる方法と、ゴムまたは合成樹脂となるモノマー、オリゴマーを含む反応液を用いる方法の 2 種類の方法がある。

さらに、これらの溶解液または反応液を所定の領域に塗布する方法としては、たとえば、スクリーン印刷、凹版印刷、ステンシル印刷などの印刷方法を使用することができる。

【0 0 7 9】

(5) プレス加工処理

分離部 1 3 の流路溝とシール部 1 4 のシール突部とを形成するためにプレス加工を行う。プレス加工により、分離部 1 3 とシール部 1 4 を同時に形成することができる。

【0 0 8 0】

(6) 加硫処理

加熱により高分子弾性層および被覆層の加硫処理を行う。なお、プレス加工時に加熱することで、金属薄板の B H (Baked Hardening) 処理およびゴム層の架橋処理を同時に行うようにしてもよい。金属薄板を B H 処理することによって、耐熱性を向上させるとともに、シール部 1 4 の応力緩和を小さくし、シール性を保持することが可能である。

以上のようにして得られたセパレータ 1 と燃料電池セル 2 とを交互に所定数配置し、その外側に集電板 3、絶縁シート 4 を配置してエンドフランジ 5 で挟持し固定することにより P E F C 1 0 0 が得られる。

【実施例】

【0 0 8 1】

下記の実施例に示す条件でセパレータを作製した。

金属薄板は各実施例で共用し、たて 1 0 c m、よこ 1 0 c m、厚さ 0. 2 m m の S U S 3 0 4 製薄板を用いた。また、サンドブラストによる表面粗化を行い、プレス加工により外周部にシール突部を形成し、中央部に分離溝を形成した。

【0 0 8 2】

(実施例 1)

1 液性加熱硬化型オレフィン系シール材 (スリーポンド社製、商品名 スリーポンド 1 1 5 2) を、シール突部の頂部となる位置にスクリーン印刷で印刷する。1 2 0 ℃で 4 0

分間加熱硬化させ、層厚みが $25\mu\text{m}\sim 30\mu\text{m}$ の高分子弾性層を形成する。加熱硬化後、プレス加工によりシール突部を形成する。

【0083】

(実施例2)

予めプレス加工によりシール突部を形成する。クロロスルホン化ポリエチレン、無機質フィラーおよび溶媒を混合したシール材（スリーボンド社製、商品名 スリーボンド1104）を、シール突部の頂部にスクリーン印刷で印刷し、加熱硬化させ、層厚みが $15\mu\text{m}\sim 20\mu\text{m}$ の高分子弾性層を形成する。

【0084】

(実施例3)

予めプレス加工によりシール突部を形成する。光硬化性粘着材であるシリコンPSAを、シール突部の頂部に針状ノズルで吐出し、光照射して硬化させ、層厚みが $15\mu\text{m}\sim 20\mu\text{m}$ の高分子弾性層を形成する。

【0085】

(実施例4)

SUS304薄板表面をサンドブラストで粗化し、ポリアニリンによるプライマー処理を施し、アリル系付加重合型ポリイソブチレンと、導電性カーボングラファイトとを混合したものを、厚さ $50\mu\text{m}$ で塗布し、 130°C で2時間加熱硬化させて被覆層を形成する。実施例1と同様に、1液性加熱硬化型オレフィン系シール材（スリーボンド社製、商品名 スリーボンド1152）を、シール突部の頂部となる位置にスクリーン印刷で印刷し、 120°C で40分間加熱硬化させ、層厚みが $25\mu\text{m}\sim 30\mu\text{m}$ の高分子弾性層を形成する。加熱硬化後、プレス加工によりシール突部を形成する。

【0086】

(実施例5)

SUS304薄板表面をサンドブラストで粗化し、ポリアニリンによるプライマー処理を施し、アリル系付加重合型ポリイソブチレンと、導電性カーボングラファイトとを混合したものを、厚さ $50\mu\text{m}$ で塗布し、 130°C で2時間加熱硬化させて被覆層を形成する。プレス加工によりシール突部を形成する。クロロスルホン化ポリエチレン、無機質フィラーおよび溶媒を混合したシール材（スリーボンド社製、商品名 スリーボンド1104）を、シール突部の頂部にスクリーン印刷で印刷し、加熱硬化させ、層厚みが $15\mu\text{m}\sim 20\mu\text{m}$ の高分子弾性層を形成する。

【0087】

(比較例)

プレス加工により、SUS304薄板に流路溝を形成する。このときシール突部は形成しない。上記実施例でシール突部を形成した外周部に相当する部分に、厚さ1mmのポリイソブチレン系フラットシートガasketを設ける。

実施例1～5および比較例についてシール試験を行った。シール試験は、セパレータを4枚積層し、厚み10mmの鋼材板で挟み込んでボルトにより積層方向に締め付ける。分離部に設けた注入孔から空気を注入し、漏れの有無を調べた。

実施例1～5では空気漏れは全く無く、良好なシール性能を示した。これに対し、比較例では空気漏れが発生した。

【図面の簡単な説明】

【0088】

【図1】固体高分子型燃料電池（PEFC）100を展開した状態で模式的に示した斜視図である。

【図2】セパレータ1を含む単位電池101の水平断面図である。

【図3】ばね力が発生するためのシール部14の形状を説明する図である。

【図4】単位電池101を側面から見た概略図である。

【図5】第1の実施形態におけるシール部14の要部拡大図である。

【図6】第1の実施形態における分離部13の要部拡大図である。

【図 7】 第 2 の実施形態におけるシール部 1 4 の要部拡大図である。

【図 8】 第 2 の実施形態における分離部 1 3 の要部拡大図である。

【図 9】 第 3 の実施形態におけるシール部 1 4 の要部拡大図である。

【図 1 0】 第 3 の実施形態における分離部 1 3 の要部拡大図である。

【図 1 1】 他の実施形態であるセパレータ 1 を含む単位電池 1 0 1 の水平断面図である。

【図 1 2】 他の実施形態であるセパレータ 1 を含む単位電池 1 0 1 の水平断面図である。

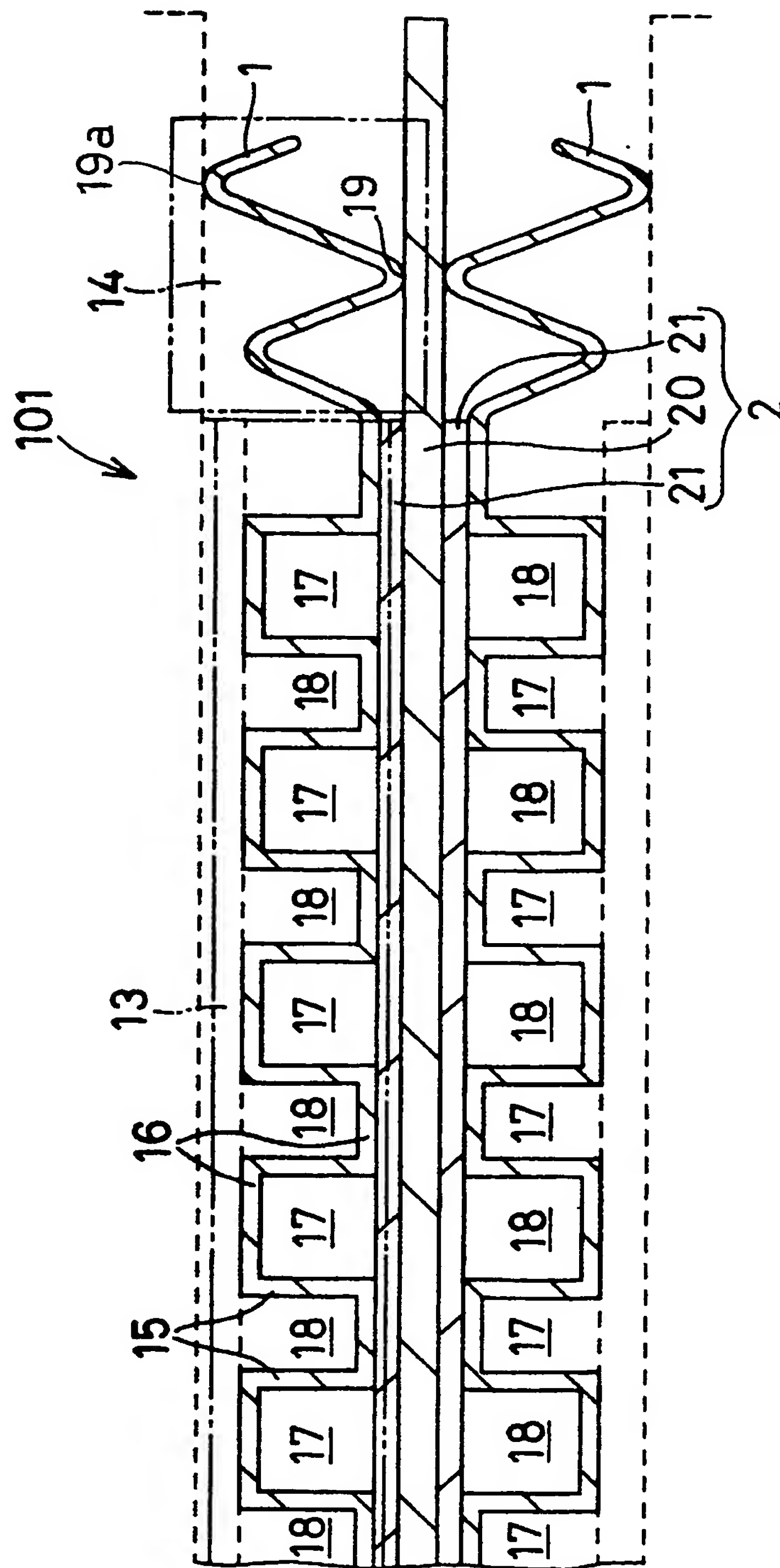
【図 1 3】 単位電池 1 0 1 を側面から見た概略図である。

【符号の説明】

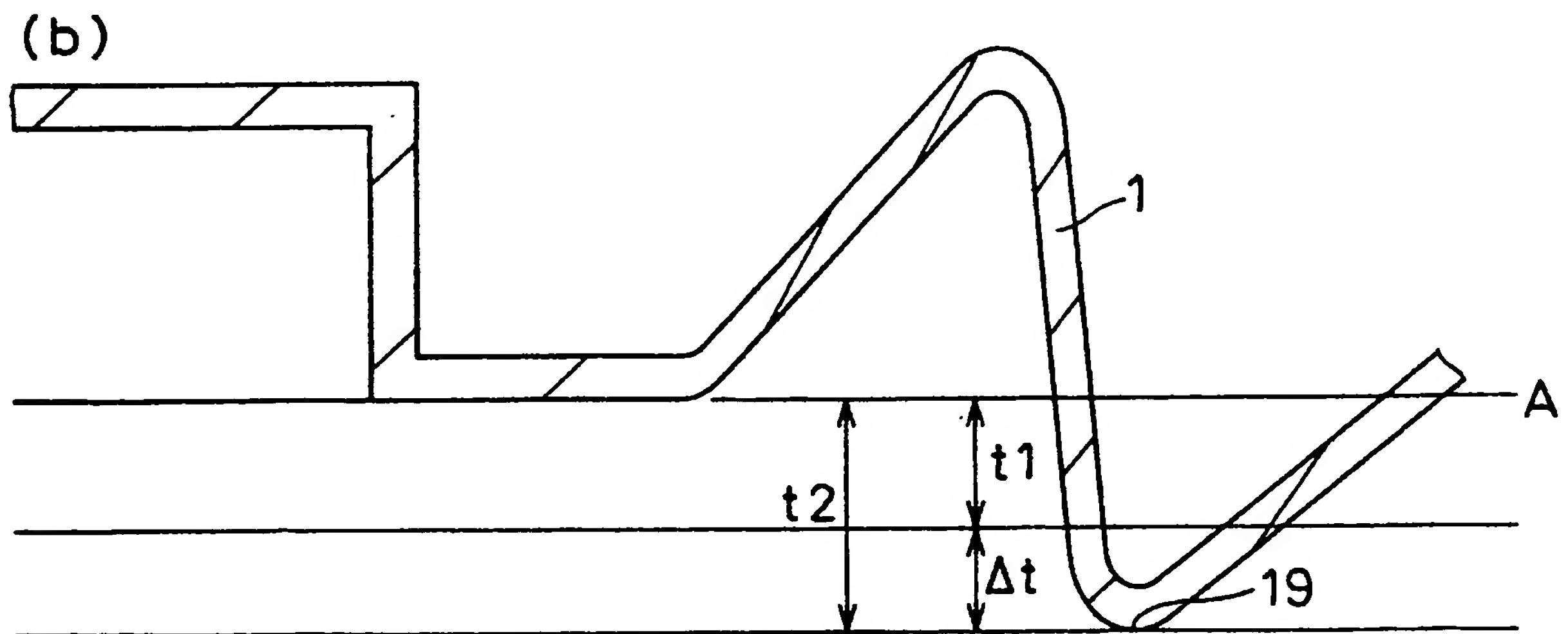
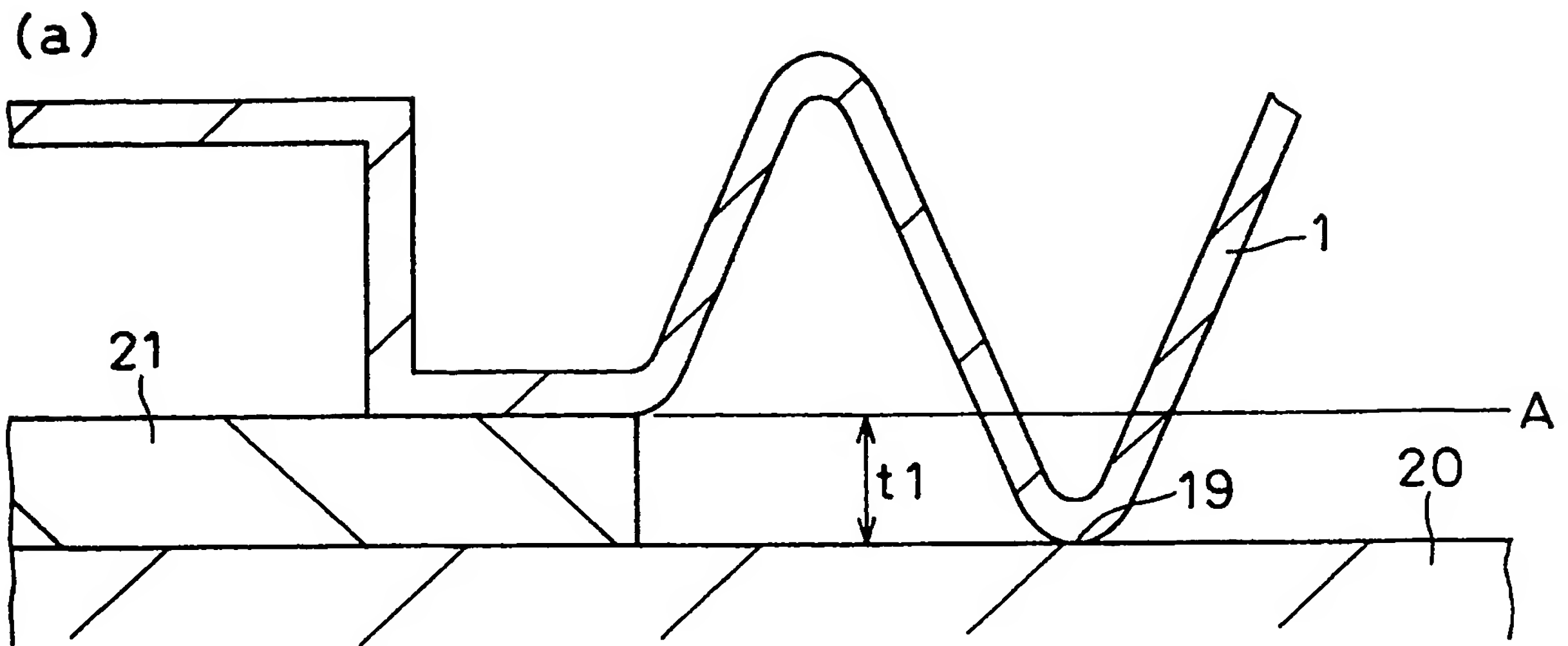
【 0 0 8 9 】

- 1 セパレータ
- 2 燃料電池セル
- 3 集電板
- 4 絶縁シート
- 5 エンドフランジ
- 6 水素ガス供給口
- 7 冷却水供給口
- 8 酸素ガス供給口
- 9 水素ガス排出口
- 1 0 冷却水排出口
- 1 1 酸素ガス排出口
- 1 2 電極配線
- 1 3 分離部
- 1 4 シール部
- 1 5 分離壁
- 1 6 電極接触壁
- 1 7 水素ガス流路
- 1 8 酸素ガス流路
- 1 9 , 1 9 a 頂部
- 2 0 高分子膜
- 2 1 触媒電極
- 3 0 金属薄板
- 3 1 被覆層
- 3 2 接着層
- 4 0 高分子弾性層
- 1 0 0 固体高分子型燃料電池 (P E F C)
- 1 0 1 単位電池

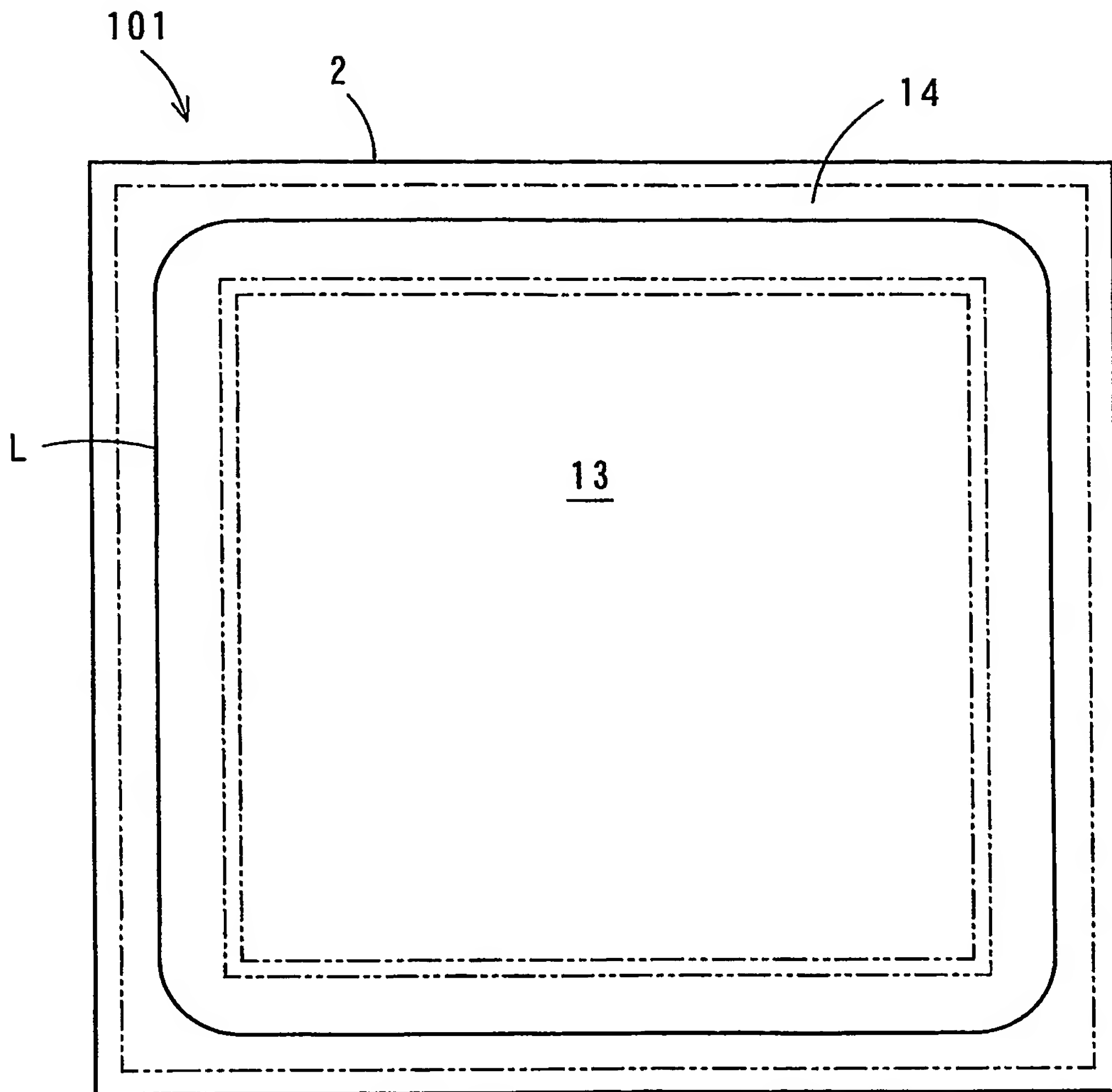
【図 2】



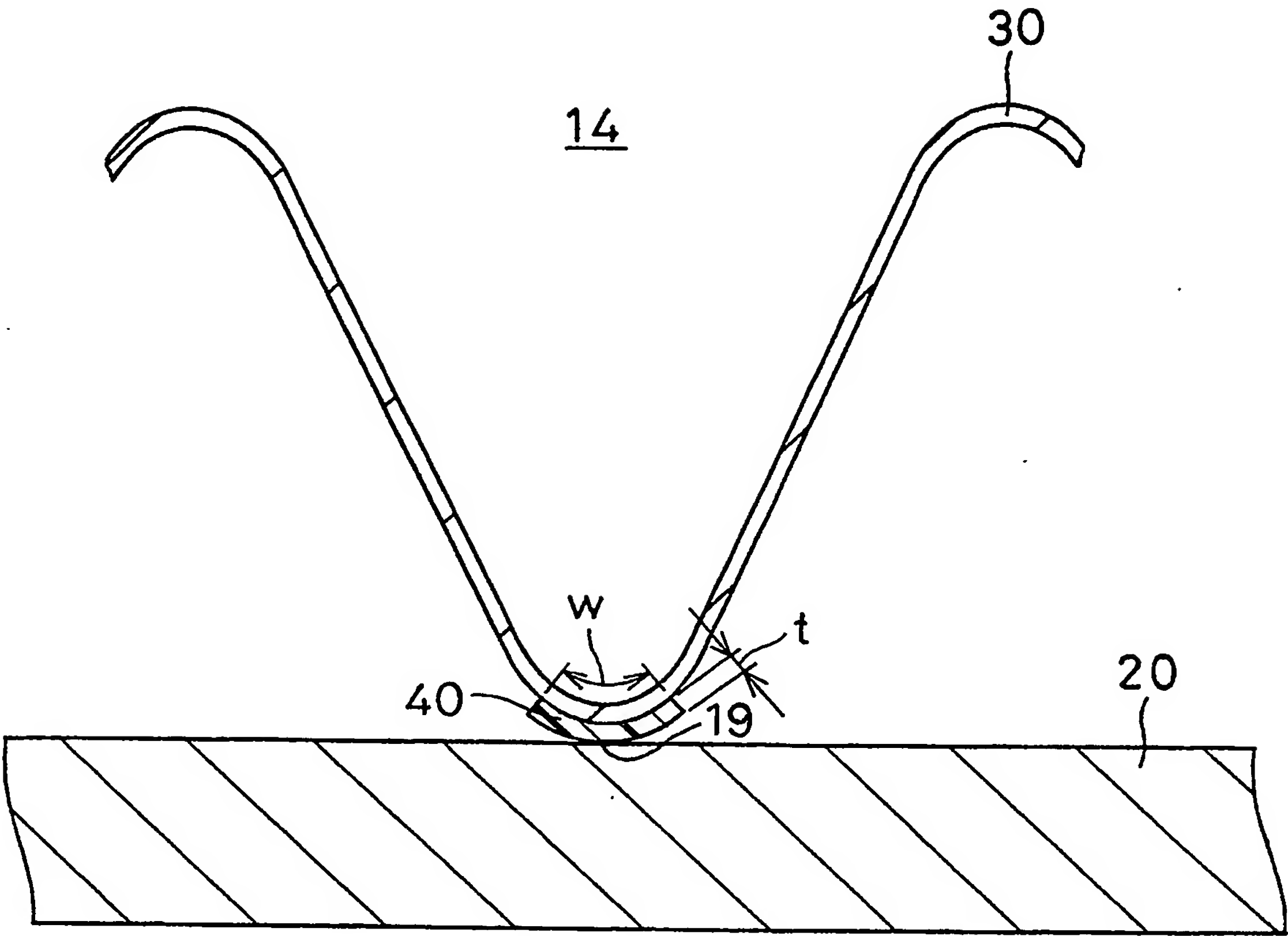
【図 3】



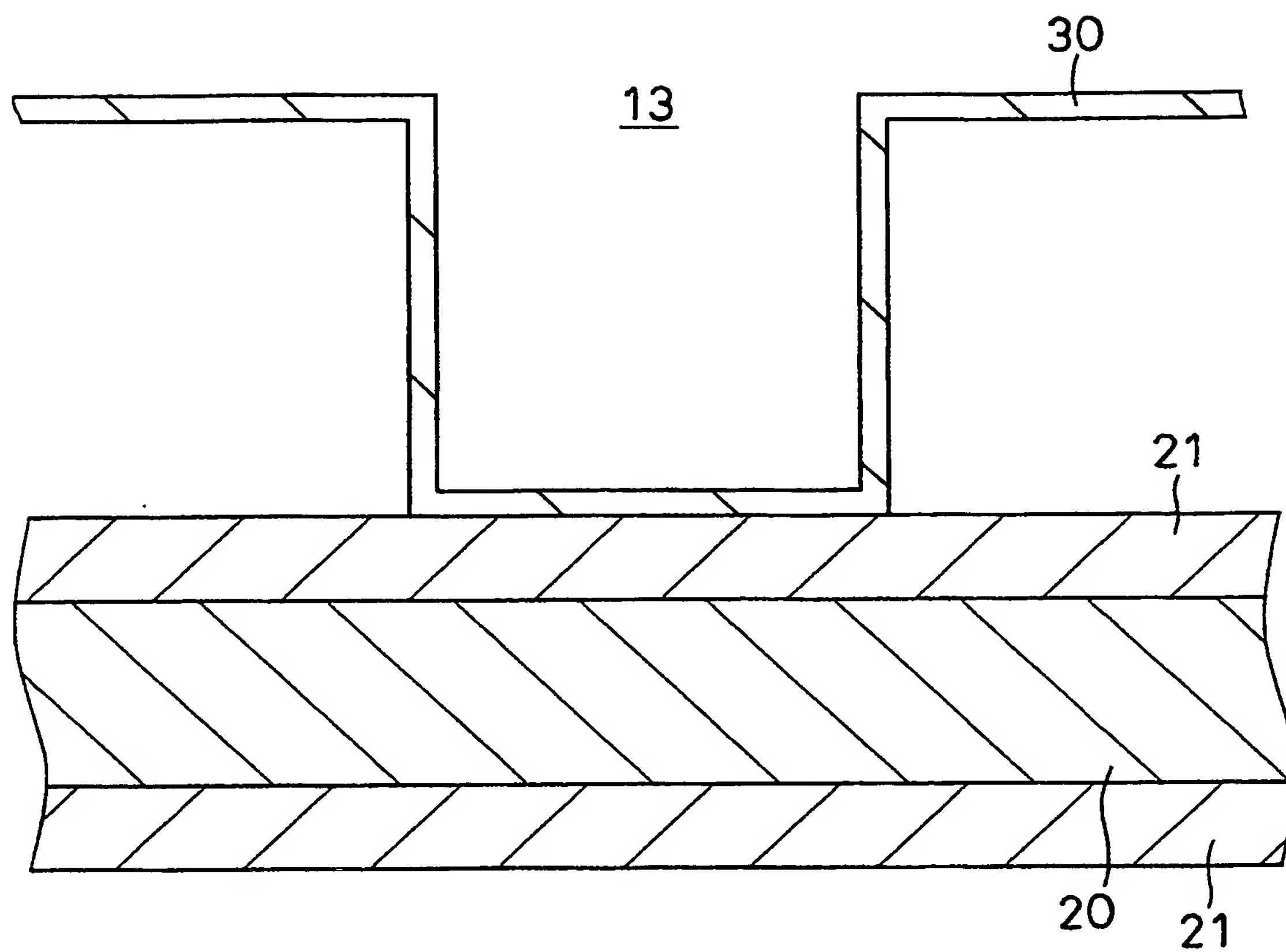
【図 4】



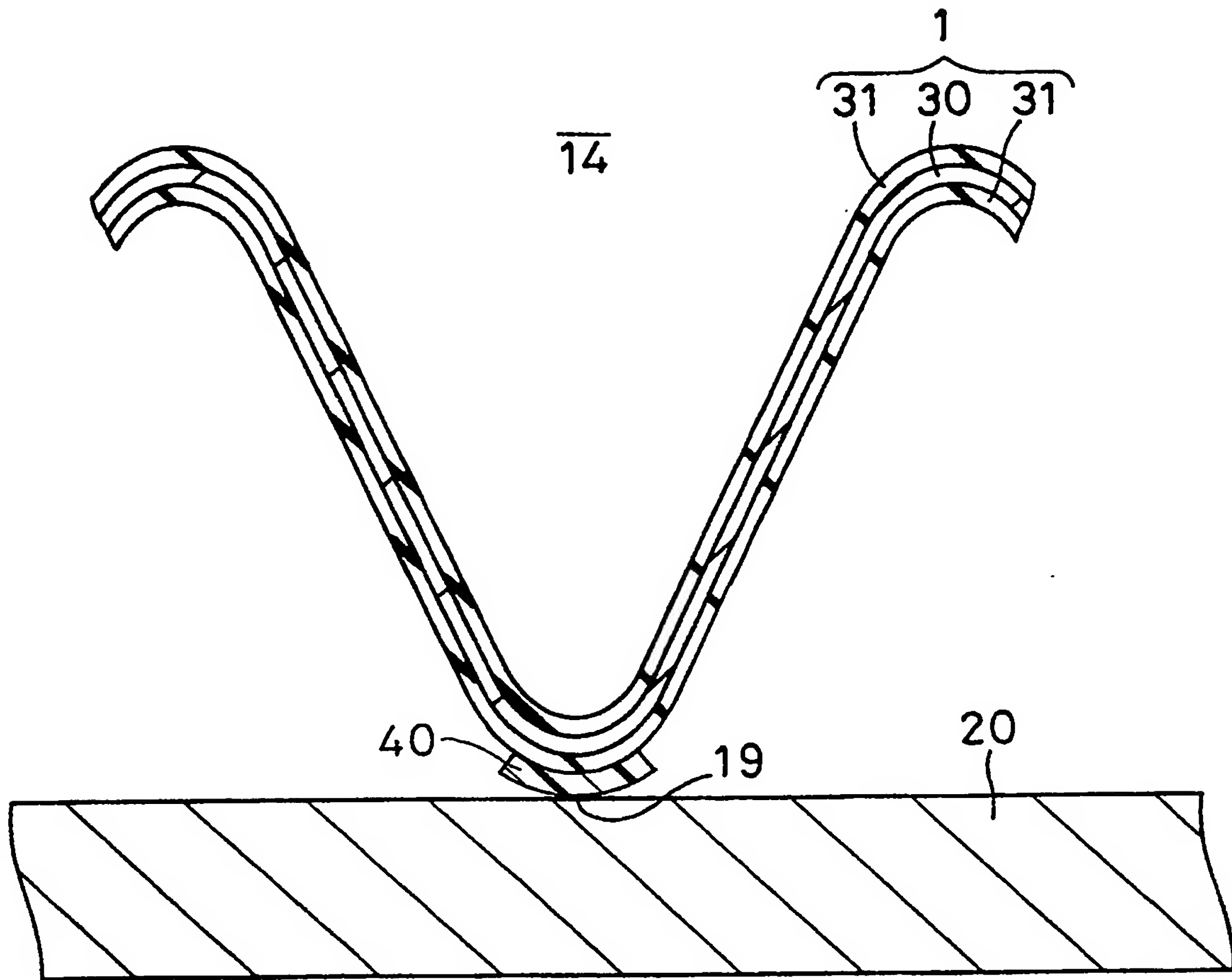
【図 5】



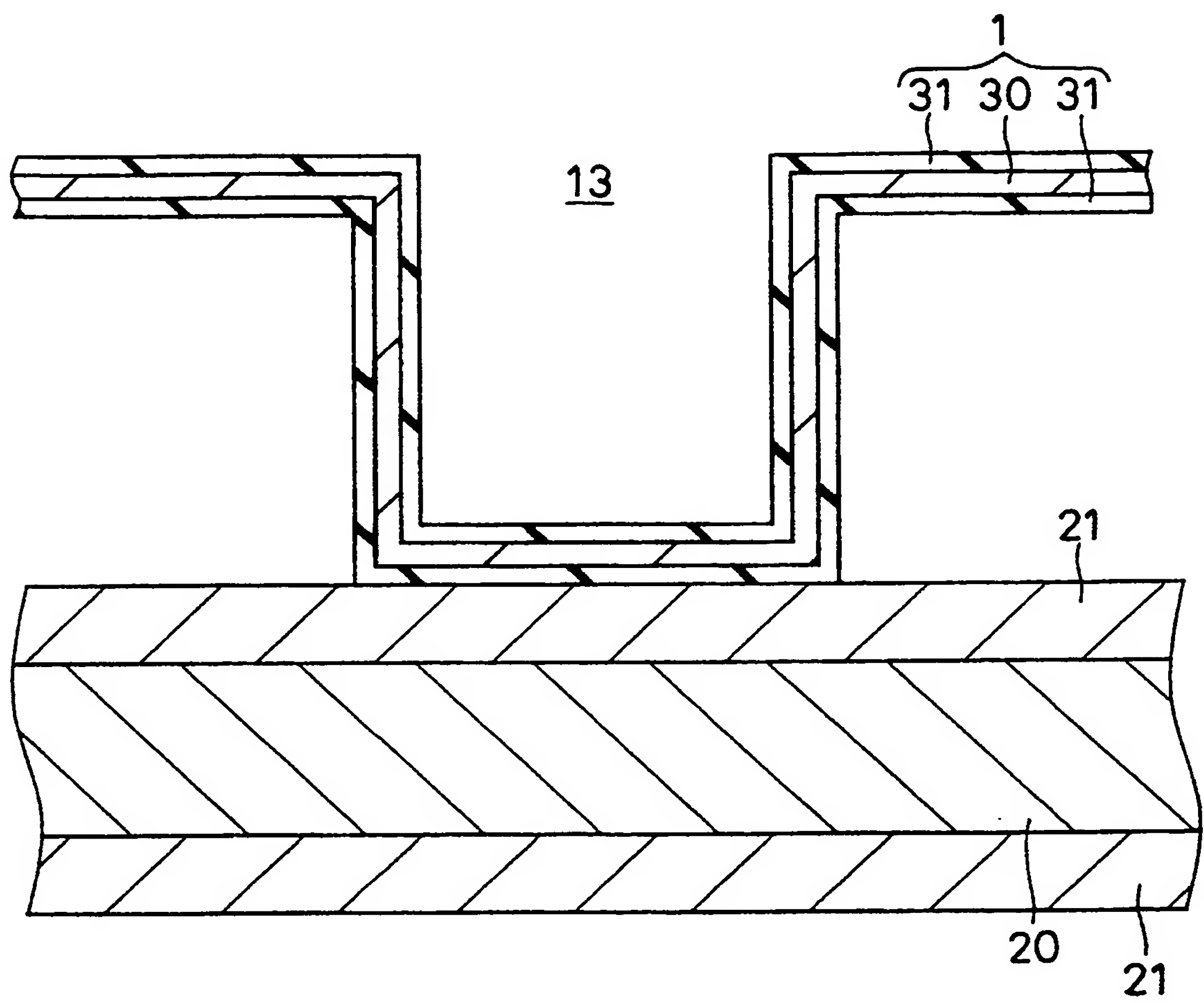
【図 6】



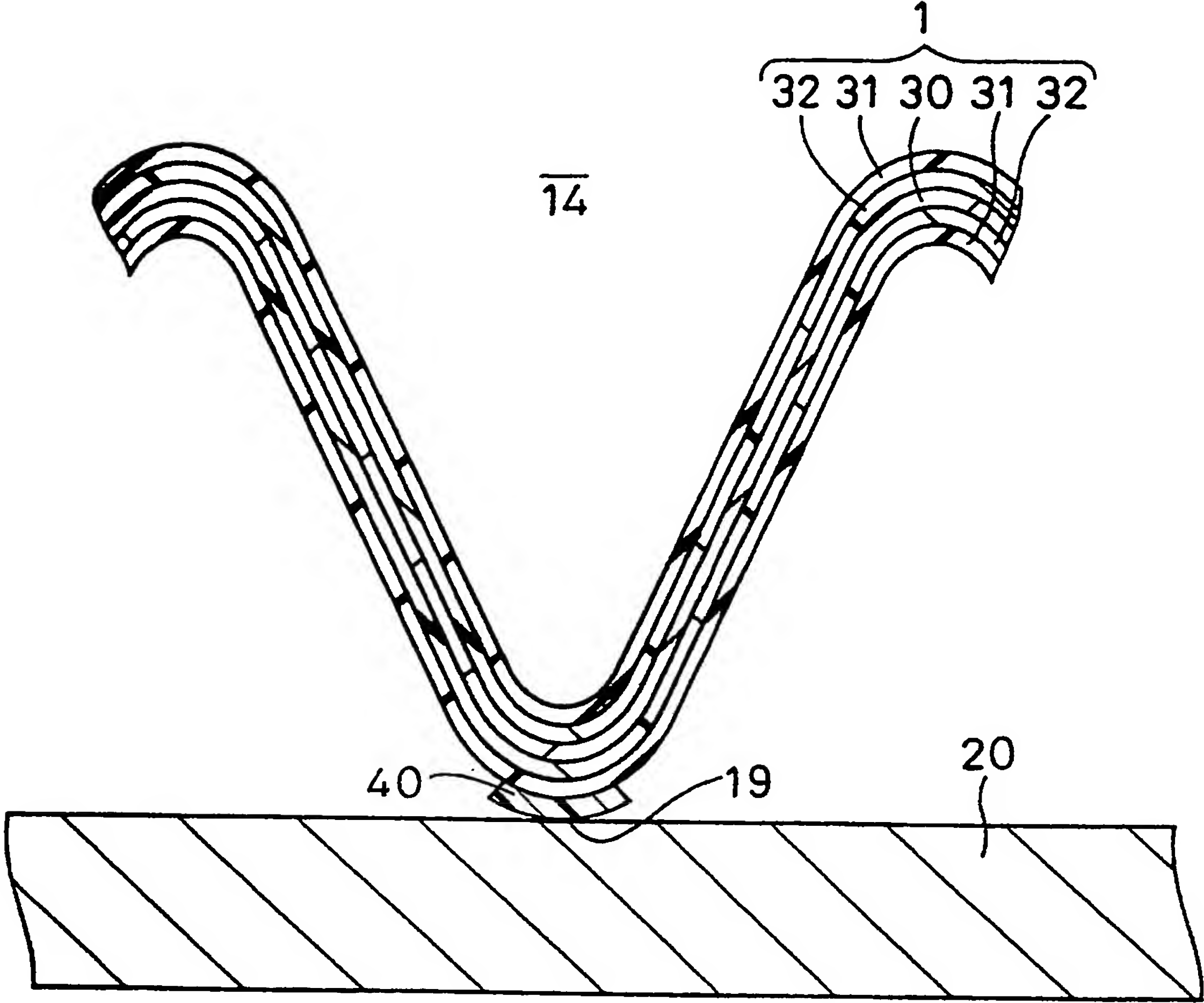
【図 7】



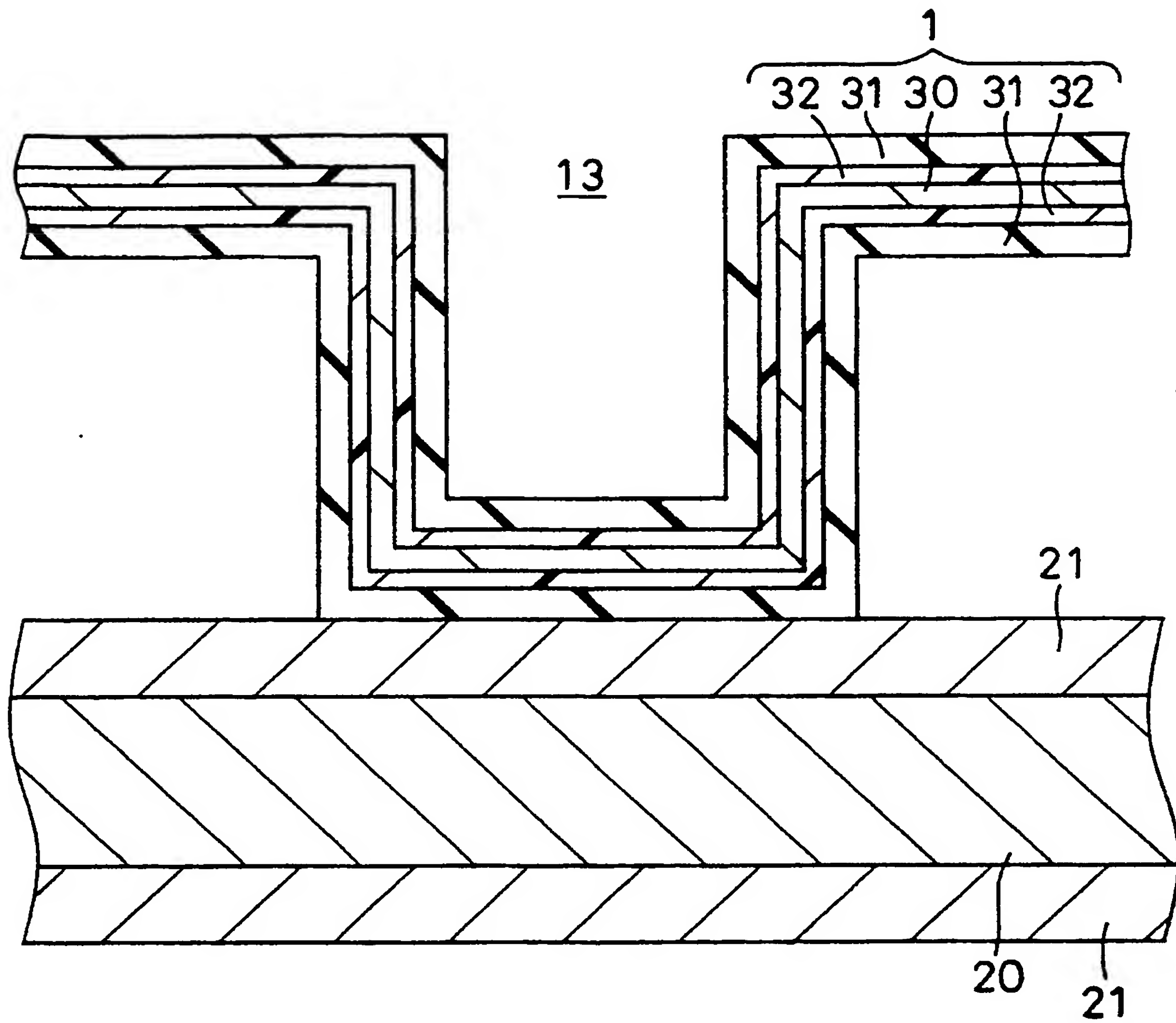
【図 8】



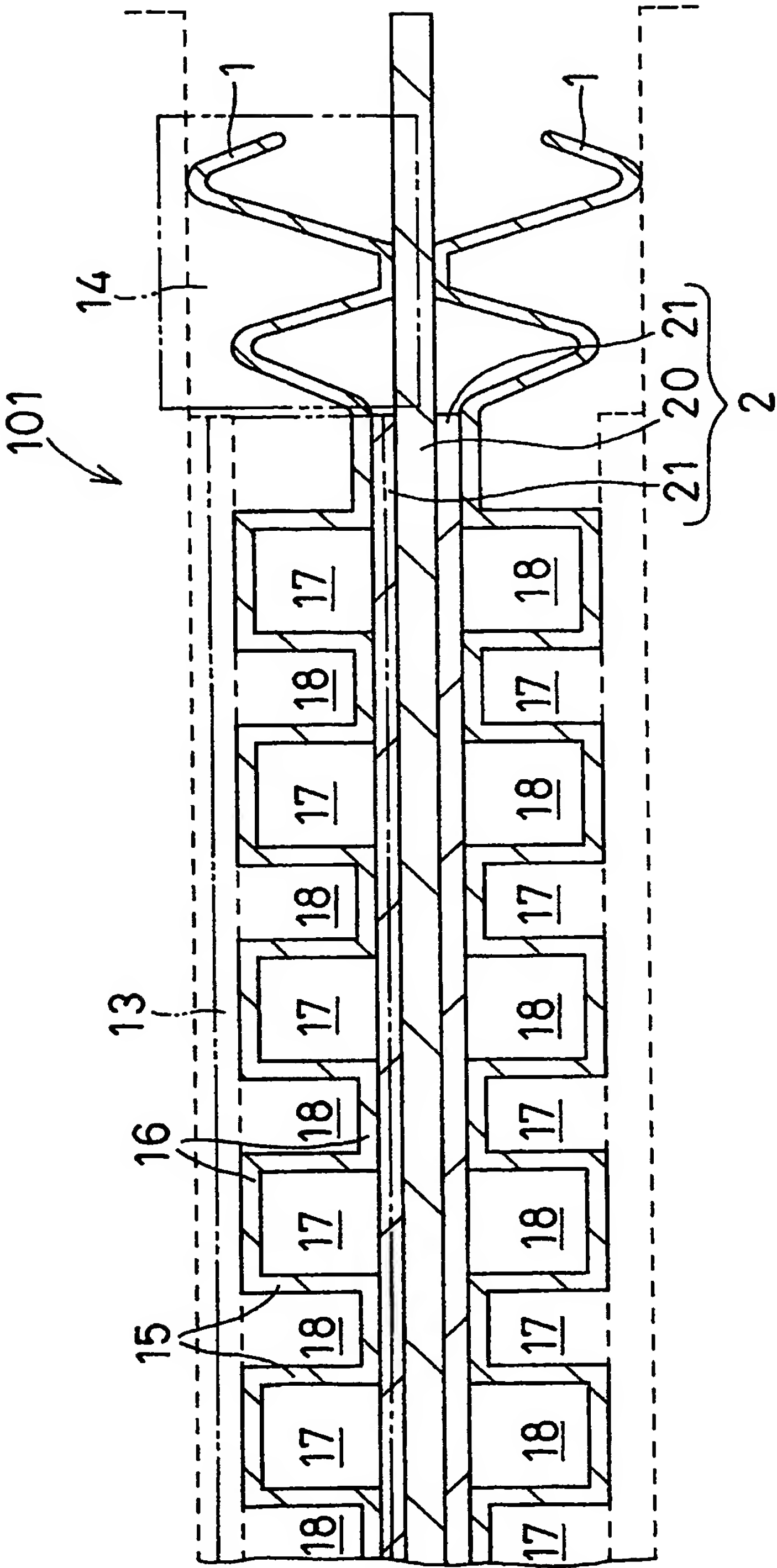
【図 9】



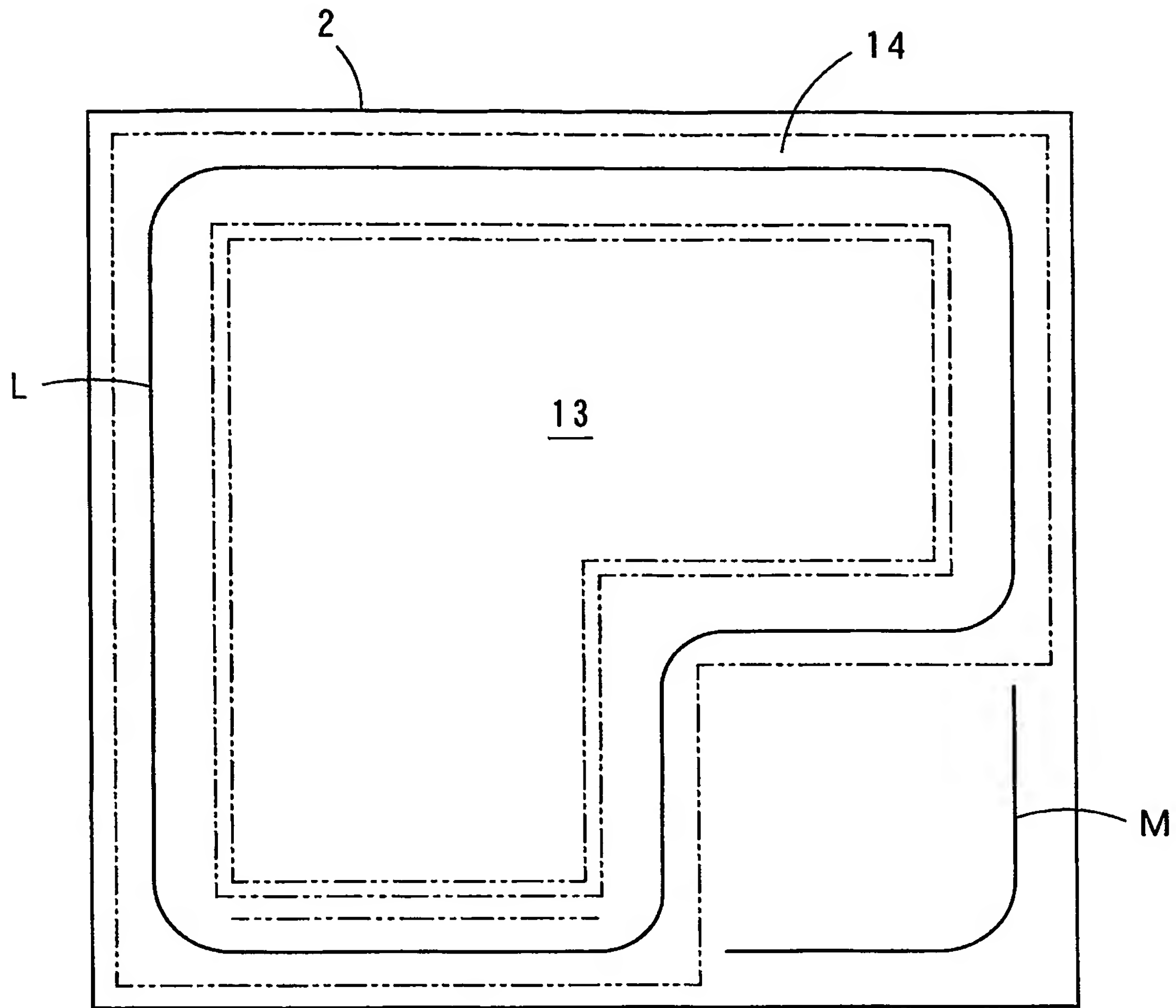
【図 10】



【図 12】



【図 1 3】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 燃料電池の部材点数を削減し、製造工程を短縮することができるセパレータを提供する。

【解決手段】 セパレータ 1 は、金属薄板 3 0 からなり、シール部 1 4 では、シール突部の高分子膜 2 0 に接触する部分に高分子弾性層 4 0 が設けられ、高分子弾性層 4 0 が高分子膜 2 0 に当接してシールしている。高分子弾性層 4 0 のシールライン方向幅 W は、1 ～ 1 0 mm が好ましく、さら好ましくは 2 ～ 7 mm である。また、層厚み t は、1 ～ 1 0 0 μ m が好ましく、さら好ましくは 2 ～ 5 0 μ m である。

【選択図】 図 5

特願 2 0 0 4 - 2 3 2 5 8 8

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [0 0 0 1 1 1 0 8 5]

1. 変更年月日	2 0 0 2 年 2 月 2 1 日
[変更理由]	住所変更
住 所	大阪府大阪市浪速区桜川 4 丁目 4 番 2 6 号
氏 名	ニッタ株式会社

This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record.

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☒ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.